

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-007897

(43)Date of publication of application : 12.01.1996

(51)Int.Cl.

H01M 4/86

H01M 4/88

H01M 8/02

(21)Application number : 06-138575

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 21.06.1994

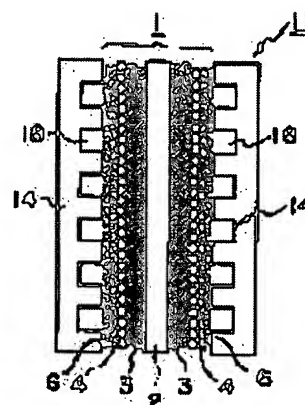
(72)Inventor : MIZUNO SEIJI

## (54) FUEL CELL JUNCTION BODY AND MANUFACTURE THEREOF

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide a fuel cell junction body capable of enhancing gas diffusion capability, making exhaust water control of excess water easy, and preventing cell performance drop caused by concentration polarization.

**CONSTITUTION:** A junction body 1 of a fuel cell comprises an electrolyte film 2, a catalytic reaction layer 3 whose main component is carbon particles on which catalysts are carried, and a gas diffusion layer 4 made of carbon particles and water repellent resin, formed by sticking carbon short fibers at least on the surface on the opposite side to the catalytic reaction layer 3 in the state intertwined with the carbon particles. In the junction body 1, since the conductive carbon fibers intertwined each other cover the surface of the gas diffusion layer 4, an electrode can be made thin with conductivity with a separator (current collector) 14 ensured, strength of the gas diffusion layer 4 ensured, the catalytic reaction layer 3 protected without use of an electrode substrate such as carbon cloth and carbon paper. Therefore, gas diffusion capability and excess water exhausting capability are enhanced and high rate performance is improved.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

11.01.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-7897

(43) 公開日 平成8年(1996)1月12日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	4/86	Z		
	4/88	C		
	8/02	E 9444-4K		

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平6-138575

(22) 出願日 平成6年(1994)6月21日

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 水野 誠司

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

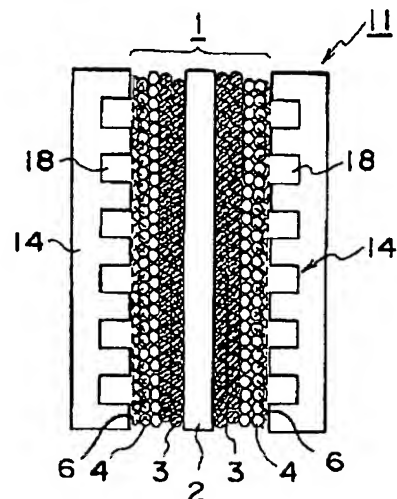
(74) 代理人 弁理士 吉田 研二 (外2名)

(54) 【発明の名称】 燃料電池の接合体およびその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となり、濃度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得る。

【構成】 燃料電池の接合体1を、電解質膜2と、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒反応層3と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなるガス拡散層4と、で構成する。この接合体1においては、導電体の炭素繊維が絡み付いた状態でガス拡散層4の表面を覆うこととなるため、カーボンクロスやカーボンペーパー等の電極基材を用いることなく、セパレータ(集電体)14との導電性の確保、ガス拡散層4の強度の確保及び触媒反応層3の保護を行いながら電極を薄くできるため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性が改善される。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】 電解質と、

触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなる拡散層と、から構成される燃料電池の接合体。

【請求項 2】 炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレスにて一体化する工程と、前記基材を電解質から剥がす工程と、からなる燃料電池の接合体製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は燃料電池の接合体およびその製造方法、特に電解質膜、触媒反応層、ガス拡散層からなる接合体のガス拡散層の改良に関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池は、原料ガスの反応エネルギーを直接的に電気エネルギーに変換する電池であり、図 4、5 に示されるような単セルを単位として発電を行う。この単セル 11 は、接合体 12 がセパレータ 14 に挟持されて構成されており、接合体 12 は、電解質膜 15 と、この電解質膜の両面に形成される触媒反応層 16 と、この触媒反応層 16 上に被覆されるガス拡散電極 17 からなる。ここで、電解質膜 15 は燃料電池のイオン伝導体として機能するものであり、取扱いの利便等から固体高分子のものが一般的に使用されている。

【0003】このような燃料電池において、セパレータ 14 の挟持面に設けられているガス流路 18 に燃料ガス（例えば水素）及び酸化ガス（例えば酸素）をそれぞれ通した場合には、これらはガス拡散電極 17 を介して触媒反応層 16 に供給される。この内、水素ガスはアノード側触媒反応層においてプロトンを生じ、外部回路に電子を放出する。生成したプロトンは、固体高分子電解質膜 15 を通って酸素側に移動し、酸素側の触媒反応層（カソード側触媒反応層）において酸素と反応して水を生じる。

【0004】このような触媒反応層とガス流路 18 との間にはガス拡散電極 17 が配されており、該ガス流路から触媒反応層への燃料ガス又は反応ガスを良好に拡散させると共に集電体 14 間との電子の伝達を行わせる機能、及び触媒反応層を集電体との摩擦による剥がれなどから保護する機能を有している。そのようなガス拡散電極の基材としては、主にカーボンペーパーやカーボンクロス等が用いられている（例えば、特開昭 60-211774 号公報）。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、電極としてカーボンクロスやカーボンペーパー等を用いると、それらの厚みに起因してガス流路から触媒までの距離が長くなり、ガスの拡散性の悪化、余剰水の排出性の悪化等が生じ、特に高負荷領域での出力には低下が生じる。また、単に電極を配設しないようにすると、導電性が悪化する（通常、触媒反応層には撥水性付与の目的で非導電性のフッ素樹脂が添加されている為）だけでなく、接触抵抗の  $V_p$  及び摩擦等により触媒層が損傷を受ける等のおそれがある。

【0006】本発明は上記のような従来の問題点を解消することを課題になされたもので、ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となり、湿度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得ることを目的とする。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】以上のような課題を解決するために、本願の請求項 1 記載の発明に係る燃料電池の接合体は、電解質と、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなる拡散層と、から構成されることを特徴とする。

【0008】また、請求項 2 記載の発明に係る燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレスにて一体化する工程と、前記基材を電解質から剥がす工程と、からなることを特徴とする。

【0009】なお、上記電解質として固体高分子電解質膜を用いた場合には、上記触媒層に所定の電解質溶液を含ませる必要がある。

## 【0010】

【作用】以上のようにして構成される請求項 1 記載の発明に係る燃料電池の接合体は、炭素粒子（カーボンブラック）と撥水性樹脂粒子（テフロン）からなる拡散層に導電体である炭素繊維が絡み付いて該層の表面を覆っているため、カーボンクロスやカーボンペーパー等の電極基材を用いることなく、該層の強度の確保、触媒層の保護ができると同時に、集電体との導電性を確保をしつつ電極を薄くできるため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0011】請求項 2 記載の発明における燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸させた後、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化し、前記基材を電解質から剥がすようにしたことにより、触媒を担持した炭素粒子を主体とする部分及びガス拡散電極としての必要最小限の機能部位を残

した状態で、基材の余分な部位を容易に除去することができる。このため、請求項2記載の製造方法によれば、前記請求項1の接合体を簡単な作業工程によって安価に製造することができる。

#### 【0012】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基づいて説明する。図1は本発明の接合体の構成を示す概要図、図2はその拡大図である。なお、従来例と同一の構成要素には同一符号を付しその説明を省略する。尚、本実施例は電解質膜に陽イオン交換膜（例えばナフイオン膜：米国デュポン社の商品名）を用いた、所謂、固体高分子型燃料電池を本発明を用いた場合にて説明する。

【0013】本実施例に係る接合体1は、電解質膜2と、この電解質膜2の両面に塗布される触媒反応層3と、この触媒反応層3上に被覆されるガス拡散層4及び6と、からなる。そして、触媒反応層3とガス拡散層4及び6とで電極を構成している。なお、従来例と同様に、電極基材（炭素）で構成されたセパレータ14は集電体の機能も兼ねる。

【0014】上記触媒反応層3は電極反応の触媒が担持された炭素微粒子と電解質膜の溶液とを混合して形成されて成り、ガス拡散層4及び6はフッ素系樹脂と炭素粒子とを混合した撥水層4を主体として、該炭素粒子に絡みあい少なくとも該撥水層から集電体側に露出した炭素短繊維群6からなる。尚、本実施例においては、炭素短繊維が撥水層の一部の炭素粒子とのみ絡み合った状態としたが、導電性及び保護機能の面からは撥水層の厚さ方向にわたって絡み合っていることも良いし、更に触媒反応層まで達するような絡み具合とした方が良好である。このため、カーボクロスやカーボンペーパー等の電極基材を用いた場合と比べて電極を薄くできるのはもちろんのこと、セパレータ（集電体）14との導電性を確保しつつガス拡散層4の強度が確保でき、同時に触媒反応層3の保護もできる。このため、カーボクロス等を用いた場合と比較してガスの拡散性及び余剰水の排水性を向上させることができ、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0015】次に上記の構成からなる本発明の接合体製造方法を図2に基づいて具体的に説明する。まず、電極基材となるカーボクロス（カーボン短繊維を縫った糸を平織したもの厚さ0.4mm）6に、テフロン7（50vol%）を分散させ、撥水处理を施したカーボブラック8を塗り込み、ガス拡散層4を形成する。次に、このガス拡散層4の上面に、20%白金9を担持したカーボン10と、Pt0.4mg/cm<sup>2</sup>なる量と陽イオン交換樹脂溶液（固形分5%、水+プロパノール）を固形分が1mg/cm<sup>2</sup>なる量とを混合したスラリーを塗布して、触媒反応層3を形成する。次にパーフルオロカーボンスルホン酸系陽イオン交換膜の電解質膜2の両面に上記触媒反応層3が該電解質膜側になるように挟み、120℃、100kg/cm<sup>2</sup>でホットプレスにより圧

着する。そして、最後に上記カーボクロス6を剥がして接合体1とする。今回は基材として前述したカーボクロスをを用いたが、カーボンペーパーを用いても良い。また生産性を考慮しなければ、表面に剥離可能な状態の炭素短繊維を付着させ、吸水性（カーボブラック及び撥水樹脂からなる溶液が若干浸透する性質）を有した基板であれば特に限定されることなく用いることができる。

【0016】この剥がし時において、カーボクロス6はホットプレスにより、カーボン短繊維がはぐれ、そのカーボン短繊維の一部が触媒反応層側に絡み合う形で付着、脱落する。

【0017】なお、触媒反応層3は電解質膜へのアンカー効果及びイオン交換樹脂による結合力で付着し、ガス拡散層はテフロンにより結合しており、カーボクロスとの界面で剥がすことができる。尚、本実施例においては、ホットプレス時にカーボクロスの凹凸によって触媒反応層が押圧される為、触媒反応層と電解質膜が3次的に構成され反応面積が増大し、好適である。このようにして製造された接合体は、撥水層+炭素短繊維群の厚みが0.1mmであり、カーボクロスを剥がさずに構成した時の厚さの1/3～1/4以下である。また、カーボクロスを剥がした状態で表面に露出する炭素短繊維群の突出量は数十ミクロン程度である。また、該炭素短繊維群のセパレータに押しつけられた状態での電極面を覆う割合は50%程度であるが、それ以上でも問題ない。

【0018】次に、上記のように製造した接合体1をガス流路付きのカーボンフレームに接着、挟持して電池とし、電極面積144cm<sup>2</sup>、温度80℃で特性評価を実施した。その結果、本発明の接合体1は、ガス拡散層が薄くなった分、特に、ガスの放散性が向上し、濃度分極の低減が図れ、内部抵抗も1.5mΩで図3に示す曲線aの特性が得られ、前記図4に示す従来のカーボクロスを有し、内部抵抗1.8mΩで図3に示す曲線bの特性が得られる接合体1に比べ高性能化が図れた。

【0019】ここで、電解質膜をイオンスバッキングにより凹凸を形成し、その上に触媒担持カーボンを圧着する方法（特開平4-169069号公報）を採用すると、電子導電性を良くするため等の理由により撥水性の樹脂をガス拡散層に混合あるいは被覆する必要が生じ、結果的に集電体との接触抵抗が悪くなっていたが、本発明においてはこのような事態が生じない。また、カーボクロス等を用いない場合には、集電体との摩擦や電解質膜の膨張、収縮等により触媒反応層が脱落し、耐久性に劣るというような問題もあったが、本実施例では、拡散層に導電体の繊維（炭素繊維）を絡み付けてその表面を覆っているため、このような問題が生じない。

#### 【0020】

【発明の効果】以上のように、本発明に係る燃料電池の

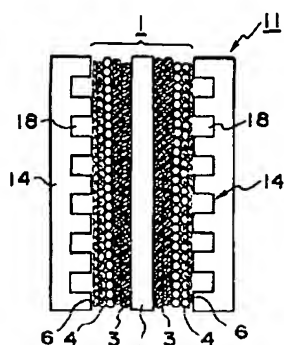
5

接合体によれば、拡散層に導電体の繊維（炭素繊維）が絡み付いてその表面を覆っているため、拡散層の強度を確保し、触媒層の保護及び集電体との導電性を確保しつつ電極を薄くできる。これにより、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

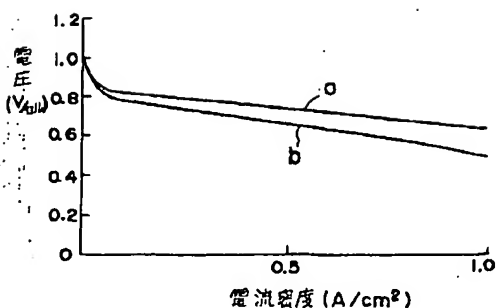
【0021】また、炭素の短繊維からなる基材の撥水性樹脂を塗布又は含浸した面と電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化した後、前記基材を電解質から剥がすようにしたことにより、触媒を担持した炭素粒子を主体とする部分及び拡散層として機能する部分を残しながら、炭素の短繊維からなる基材の余分の部分を除去することができる。このため、拡散層の強度の確保、触媒層の保護及び集電体との導電性の確保をしつつ、ガス流路から触媒までの距離が短縮できることとなり、本発明に係る燃料電池の接合体を簡単な作業工程によって安価に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】



【図3】



6

【図1】本発明の接合体を適用した燃料電池の単セルの構成を示す概要図である。

【図2】本発明の接合体の一部の拡大図である。

【図3】図1の単セルを適用した電池と従来の電池との特性比較図である。

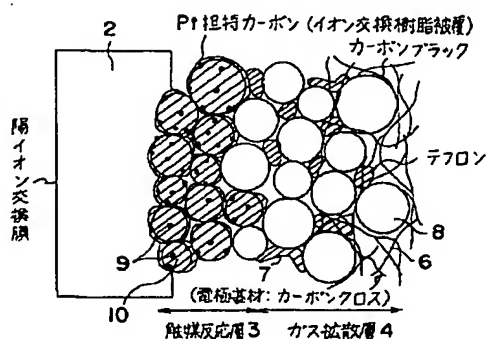
【図4】従来の燃料電池の単セルの概要を示す斜視図である。

【図5】従来の燃料電池の単セルの概要を示す側面図である。

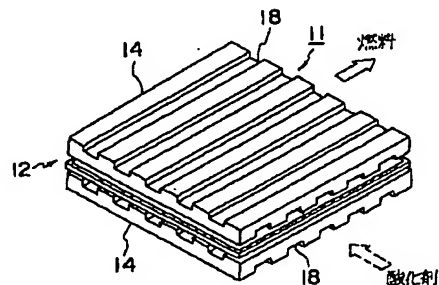
【符号の説明】

- 1 接合体
- 2 電解質膜
- 3 触媒反応層
- 4 ガス拡散層
- 6 短繊維（ガス拡散層）
- 8 カーボンブラック
- 10 カーボン

【図2】



【図4】



【図5】

